

## PCT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
 US Department of Commerce  
 United States Patent and Trademark  
 Office, PCT  
 2011 South Clark Place Room  
 CP2/5C24  
 Arlington, VA 22202  
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
 in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 20 November 2000 (20.11.00)	
<b>International application No.</b> PCT/EP00/02304	<b>Applicant's or agent's file reference</b> M/40005-PCT
<b>International filing date</b> (day/month/year) 15 March 2000 (15.03.00)	<b>Priority date</b> (day/month/year) 16 March 1999 (16.03.99)
<b>Applicant</b> OLBERT, Gerhard et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
 12 October 2000 (12.10.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:  
 \_\_\_\_\_

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer  C. Cupello  Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--



# VERTRAG ÜBER INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

REC'D 27 JUN 2001

WIPO PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT



(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>M/40005-PCT</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP00/02304</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>15/03/2000</b>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) <b>16/03/1999</b>
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK <b>B01J8/00</b>		
Anmelder <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT</b>		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  
  
☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).  
  
 Diese Anlagen umfassen insgesamt zwei Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  <b>12/10/2000</b>	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  <b>27.06.2001</b>
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter  <b>Willsher, C</b>  Tel. Nr. +31 70 340 2649  



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):  
**Beschreibung, Seiten:**

1-14                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-10                      eingegangen am                      21/02/2001    mit Schreiben vom    21/02/2001

**Zeichnungen, Blätter:**

1/4-4/4                      ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
  - ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
  - ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).
3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:
- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
  - ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
  - ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
  - ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
  - ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
  - ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.
4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/02304

- ☐ Beschreibung,      Seiten:  
☐ Ansprüche,      Nr.:  
☐ Zeichnungen,      Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen  
**siehe Beiblatt**

## VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
**siehe Beiblatt**





1. Im Vergleich zum nächstkommenden Stand der Technik (US-A-5 821 390, Dokument D3 sowie DE-A-2 830 765, Dokument D4) ist der beanspruchte Gegenstand neu, weil diese Dokumente das im vorliegenden Anspruch 1 angegebene Verhältnis  $t/d_a$  nicht offenbaren. Mittels dieses Verhältnis wird eine höhere Ausbeute an Phthalsäureanhydrid erzielt (vgl. vorliegende Beispiele 1 und 8). Erfinderische Tätigkeit für den Gegenstand der vorliegenden Ansprüche 1-10 kann somit anerkannt werden.
2. Die vorliegenden Ansprüche 1-10 erfüllen die Voraussetzungen des Artikels 33(2)- (4) PCT.
3. Um das Erfordernis des Artikels 6 PCT zu erfüllen, ist die Beschreibung den Ansprüchen anzupassen, besonders am dritten Absatz auf der Seite 6.



O.Z.0050/4984

## Patentansprüche

1. Rohrbündelreaktor (13) mit einem in einem Mantel (15) angeordneten, aus zahlreichen parallelen Reaktionsrohren (17) bestehenden Reaktionsrohrbündel (18), wobei das Reaktionsrohrbündel (18) 10.000 bis 50.000 Reaktionsrohre (17) aufweist, und mit Mitteln zur Zu- und Abführung eines die Reaktionsrohre (17) umströmenden Wärmetauschnittels, wobei die Reaktionsrohre einen Außendurchmesser  $d_a$  und eine Rohrteilung  $t$  aufweisen, dadurch gekennzeichnet, daß das Verhältnis  $t / d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs wenigstens 1,3 beträgt.
2. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) mit zunehmenden Querabmessungen des Reaktionsrohrbündels (18) ansteigt.
3. Rohrbündelreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsrohrbündel (18) einen im wesentlichen kreisförmigen Querschnitt mit einem Außendurchmesser  $d_{RBA}$  von mehr als 4 m aufweist.
4. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Außendurchmesser  $d_{RBA}$  des Reaktionsrohrbündels (18) zwischen 4 m und 12 m beträgt und das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) im Bereich von 1,3 und 1,6 liegt.
5. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Außendurchmesser  $d_{RBA}$  des Reaktionsrohrbündels (18) zwischen 4 m und 10 m beträgt und das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) im Bereich von 1,3 und 1,5 liegt.
6. Rohrbündelreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsrohrbündel (18) einen im wesentlichen rechteckigen Querschnitt mit einer parallel zur Strömungsrichtung des Wärmetauschnittels gemessenen Rohrbündeltiefe  $d_{RBt}$  von wenigstens 1,3 m aufweist.



## 2

7. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Tiefe  $d_{RBt}$  des Reaktionsrohrbündels (18) zwischen 1,3  
und 4 m beträgt und das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum  
Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) im Bereich von  
1,3 und 1,6 liegt.
8. Rohrbündelreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch  
gekennzeichnet, daß der Reaktor in Längsrichtung der Reakti-  
onsrohre (17) in mindestens zwei Zonen (36,37) unterteilt  
ist, die von verschieden temperiertem Wärmetauschmittel  
durchströmt werden.
9. Verwendung eines Rohrbündelreaktors nach einem der Ansprüche 1  
bis 8 zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen.
10. Verwendung eines Rohrbündelreaktors nach einem der Ansprüche  
1 bis 8 zur Durchführung von Oxidationsreaktionen, insbeson-  
dere zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Maleinsäurean-  
hydrid, Acrylsäure, Acrolein, Methacrylsäure, Glyoxal, Phos-  
gen, Blausäure oder Vinylformamid.

---



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KINZEBACH, Werner  
Reitstötter, Kinzebach & Partner  
Sternwartstr. 4  
81633 München  
ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 20 November 2000 (20.11.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference M/40005-PCT	
International application No. PCT/EP00/02304	International filing date (day/month/year) 15 March 2000 (15.03.00)

1. The following indications appeared on record concerning:	
<input type="checkbox"/> the applicant	<input type="checkbox"/> the inventor <input checked="" type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative
Name and Address KINZEBACH, Werner Reitstötter, Kinzebach & Partner Sternwartstr. 4 D-81679 München Germany	State of Nationality
	State of Residence
	Telephone No. 089-998-3970
	Facsimile No. 089-987-304
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:	
<input type="checkbox"/> the person <input type="checkbox"/> the name <input checked="" type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence	
Name and Address KINZEBACH, Werner Reitstötter, Kinzebach & Partner Sternwartstr. 4 81633 München Germany	State of Nationality
	State of Residence
	Telephone No. 089-998-3970
	Facsimile No. 089-987-304
3. Further observations, if necessary: <b>The new agent's address on the Demand has been considered as a change under Rule 92bis. In case of disagreement, the International Bureau should be notified immediately.</b>	
4. A copy of this notification has been sent to:	
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer C. Cupello
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38





## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No.

PCT/ 00/02304

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01J8/06 B01J19/24 B01J19/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 398 595 A (SMALL WILLIAM M) 16 August 1983 (1983-08-16) example 1	1,2,6,7
X	US 4 505 879 A (LHONORE PIERRE ET AL) 19 March 1985 (1985-03-19) example 1	1,2,6
A	US 5 821 390 A (HAMMON ULRICH ET AL) 13 October 1998 (1998-10-13) abstract; example 1	1-11
A	DE 28 30 765 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 31 January 1980 (1980-01-31) figure 1; examples 1-5	1-11
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 August 2000

Date of mailing of the international search report

12/09/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Willsher, C

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 00/02304

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 3 566 961 A (BETTERMANN DIETER ET AL) 2 March 1971 (1971-03-02) figures 3,4 -----	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT  
on patent family members

International Application No  
PCT/EP 00/02304

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4398595 A	16-08-1983	US 4311187 A	19-01-1982
		AU 523547 B	05-08-1982
		AU 6427680 A	04-06-1981
		CA 1135684 A	16-11-1982
		DE 3066319 D	01-03-1984
		EP 0030012 A	10-06-1981
		ES 497254 D	01-05-1982
		ES 8204157 A	16-07-1982
		GB 2064093 A,B	10-06-1981
		JP 1514667 C	24-08-1989
		JP 56094195 A	30-07-1981
		JP 63060314 B	24-11-1988
		MX 153823 A	19-01-1987
		US 4413394 A	08-11-1983
US 4505879 A	19-03-1985	FR 2452315 A	24-10-1980
		EP 0017559 A	15-10-1980
		ES 489853 A	16-09-1980
		JP 1246801 C	16-01-1985
		JP 55130941 A	11-10-1980
		JP 59021859 B	22-05-1984
		US 4518811 A	21-05-1985
US 5821390 A	13-10-1998	DE 4431957 A	16-03-1995
		CA 2157631 A	09-03-1996
		CN 1132735 A	09-10-1996
		CZ 9502293 A	17-04-1996
		DE 59500906 D	04-12-1997
		EP 0700714 A	13-03-1996
		ES 2107887 T	01-12-1997
		JP 8092147 A	09-04-1996
DE 2830765 A	31-01-1980	NONE	
US 3566961 A	02-03-1971	BE 720496 A	06-03-1969
		CH 493811 A	15-07-1970
		CS 154594 B	30-04-1974
		DE 1601162 A	29-10-1970
		FR 1577926 A	08-08-1969
		GB 1241703 A	04-08-1971
		NL 6812591 A	10-03-1969
		RO 59253 A	15-02-1976
		ES 357893 A	01-04-1970



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>M/40005-PCT</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 00/ 02304</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>15/03/2000</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>16/03/1999</b>
Anmelder  <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT</b>		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

#### 1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

#### 4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

#### 5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☒ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.



# INTERNATIONALE RESEARCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

EP 00/02304

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 B01J8/06 B01J19/24 B01J19/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RESEARCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 398 595 A (SMALL WILLIAM M) 16. August 1983 (1983-08-16) Beispiel 1	1,2,6,7
X	US 4 505 879 A (LHONORE PIERRE ET AL) 19. März 1985 (1985-03-19) Beispiel 1	1,2,6
A	US 5 821 390 A (HAMMON ULRICH ET AL) 13. Oktober 1998 (1998-10-13) Zusammenfassung; Beispiel 1	1-11
A	DE 28 30 765 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 31. Januar 1980 (1980-01-31) Abbildung 1; Beispiele 1-5	1-11
	--- -/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. August 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

12/09/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Willsher, C





# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

EP 00/02304

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A ✓	US 3 566 961 A (BETTERMANN DIETER ET AL) 2. März 1971 (1971-03-02) Abbildungen 3,4 -----	1-11



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

EP 00/02304

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4398595 A	16-08-1983	US 4311187 A	19-01-1982
		AU 523547 B	05-08-1982
		AU 6427680 A	04-06-1981
		CA 1135684 A	16-11-1982
		DE 3066319 D	01-03-1984
		EP 0030012 A	10-06-1981
		ES 497254 D	01-05-1982
		ES 8204157 A	16-07-1982
		GB 2064093 A, B	10-06-1981
		JP 1514667 C	24-08-1989
		JP 56094195 A	30-07-1981
		JP 63060314 B	24-11-1988
		MX 153823 A	19-01-1987
		US 4413394 A	08-11-1983
US 4505879 A	19-03-1985	FR 2452315 A	24-10-1980
		EP 0017559 A	15-10-1980
		ES 489853 A	16-09-1980
		JP 1246801 C	16-01-1985
		JP 55130941 A	11-10-1980
		JP 59021859 B	22-05-1984
		US 4518811 A	21-05-1985
US 5821390 A	13-10-1998	DE 4431957 A	16-03-1995
		CA 2157631 A	09-03-1996
		CN 1132735 A	09-10-1996
		CZ 9502293 A	17-04-1996
		DE 59500906 D	04-12-1997
		EP 0700714 A	13-03-1996
		ES 2107887 T	01-12-1997
		JP 8092147 A	09-04-1996
DE 2830765 A	31-01-1980	NONE	
US 3566961 A	02-03-1971	BE 720496 A	06-03-1969
		CH 493811 A	15-07-1970
		CS 154594 B	30-04-1974
		DE 1601162 A	29-10-1970
		FR 1577926 A	08-08-1969
		GB 1241703 A	04-08-1971
		NL 6812591 A	10-03-1969
		RO 59253 A	15-02-1976
		ES 357893 A	01-04-1970



Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

09/936,358

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

10

Applicant's or agent's file reference M/40005-PCT	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/02304	International filing date (day/month/year) 15 March 2000 (15.03.00)	Priority date (day/month/year) 16 March 1999 (16.03.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B01J 8/00		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.	
2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.	
<input checked="" type="checkbox"/>	This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).
These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.	
3. This report contains indications relating to the following items:	
I <input checked="" type="checkbox"/>	Basis of the report
II <input type="checkbox"/>	Priority
III <input type="checkbox"/>	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
IV <input type="checkbox"/>	Lack of unity of invention
V <input checked="" type="checkbox"/>	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
VI <input type="checkbox"/>	Certain documents cited
VII <input type="checkbox"/>	Certain defects in the international application
VIII <input checked="" type="checkbox"/>	Certain observations on the international application

RECEIVED

JAN 28 2002

TC 1700

Date of submission of the demand 12 October 2000 (12.10.00)	Date of completion of this report 27 June 2001 (27.06.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/02304

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-14, as originally filed,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the claims, Nos. \_\_\_\_\_, as originally filed,  
 Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 Nos. 1-10, filed with the letter of 21 February 2001 (21.02.2001),  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the drawings, sheets/fig 1/4-4/4, as originally filed,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:





## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/02304

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

1. The claimed subject matter is novel over the closest prior art (US-A-5 821 390, document D3, and DE-A-2 830 765, document D4), because these documents do not disclose the ratio  $t/d_a$  indicated in the present Claim 1. This ratio achieves a higher yield of phthalic anhydride (cf. the present Examples 1 and 8). An inventive step can therefore be acknowledged for the subject matter of the present Claims 1-10.
2. The present Claims 1-10 meet the requirements of PCT Article 33(2) to (4).



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/02304

## VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

3. To meet the requirements of PCT Article 6, the description should be brought into line with claims, particularly in the third paragraph on page 6.



**(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum**  
Internationales Büro



**(43) Internationales Veröffentlichungsdatum**  
**21. September 2000 (21.09.2000)**

**PCT**

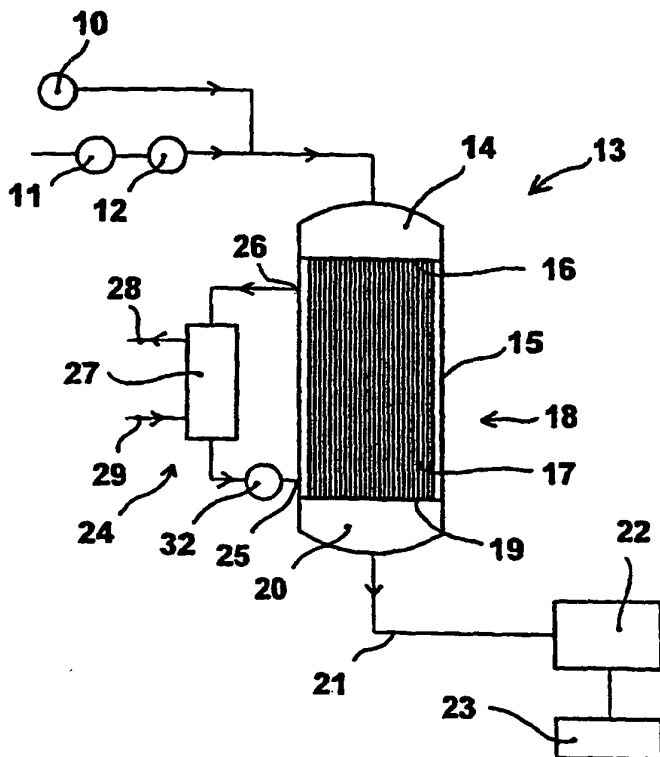
**(10) Internationale Veröffentlichungsnummer**  
**WO 00/54877 A3**

- |  |                            |  |                                |   |
|--|----------------------------|--|--------------------------------|---|
| <b>(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>:</b> | <b>B01J 8/06,</b>          | 199 56 329.2   | 23. November 1999 (23.11.1999) | DE  |
|  | 19/24, 19/00               |  |                                |   |
| <b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b>                    | <b>PCT/EP00/02304</b>      | <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];</b> |                                |   |
|  |                            | D-67056 Ludwigshafen (DE).   |                                |   |
| <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b>                    |                            | <b>(72) Erfinder; und</b>  |                                |   |
|  | 15. März 2000 (15.03.2000) | <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): OLBERT, Gerhard [DE/DE];</b>                                     |                                |   |
| <b>(25) Einreichungssprache:</b>                             | Deutsch                    | Frankenweg 11, D-69221 Dossenheim (DE).  |                                |   |
|  |                            | <b>CORR, Franz [DE/DE];</b> Königsbacher Str. 108, D-67067 Ludwigshafen (DE).                            |                                |   |
| <b>(26) Veröffentlichungssprache:</b>                        | Deutsch                    | <b>REUTER, Peter [DE/DE];</b> Karl-Marx-Str. 43, D-68199 Mannheim (DE).                                  |                                |   |
| <b>(30) Angaben zur Priorität:</b>                           |                            | <b>WAMBACH, Ludwig [DE/DE];</b> Marzallstr. 49b, D-68723 Schwetzingen (DE).                              |                                |   |
|  | 199 12 735.2               | <b>16. März 1999 (16.03.1999)</b>  | <b>DE</b>                      | <b>HAMMON, Ulrich [DE/DE];</b> Nietzschestr. 30, D-68165 Mannheim (DE). |

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

**(54) Title: MULTI-TUBE FIXED-BED REACTOR, ESPECIALLY FOR CATALYTIC GAS PHASE REACTIONS**

**(54) Bezeichnung: ROHRBÜNDELREAKTOR, INSBESONDERE FÜR KATALYTISCHE GASPHASENREAKTIONEN**



(57) **Abstract:** The invention relates to a multi-tube fixed-bed reactor and to the use of a reactor of this type for carrying out catalytic gas phase reactions, especially for carrying out exothermic or endothermic catalytic gas phase reactions such as producing phthalic anhydride (PSA), acrylic acid (AA), methacrylic acid (MAA), acrolein, maleic anhydride (MSA), glyoxal, phosgene, hydrogen cyanide or vinyl formamide (VFA). According to the invention, in the case of larger reactors where a considerable reaction heat is produced or required and must be dissipated as a result of the numerous reaction tubes (17), the ratio of tube distribution  $t$  to tube outer diameter  $d_a$  is made dependant on the reactor diameter or the tube bundle diameter  $d_{RBA}$ . If the outer diameter of the reaction tube bundle (18) is more than 4 metres, a ratio of tube distribution  $t$  to tube outer diameter  $d_a$  of at least 1.3 is preferred.

**(57) Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft einen Rohrbündelreaktor und die Verwendung eines derartigen Reaktors zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen, insbesondere zur Durchführung von exothermen oder endothermen katalytischen Gasphasenreaktionen, wie der Herstellung von Phthalsäureanhydrid (PSA), Acrylsäure (AA),

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

**WO 00/54877 A3**



(74) **Anwälte:** KINZEBACH, Werner usw.; Reitstötter, Kinzebach & Partner, Sternwartstr. 4, 81633 München (DE).

europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(81) **Bestimmungsstaaten (national):** AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

**Veröffentlicht:**

— Mit internationalem Recherchenbericht.

(88) **Veröffentlichungsdatum des internationalen**

**Recherchenberichts:**

5. April 2001

(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Methacrylsäure (MAA), Acrolein, Maleinsäureanhydrid (MSA), Glyoxal, Phosgen, Blausäure oder Vinylformamid (VFA). Erfindungsgemäss wird vorgeschlagen, bei grösseren Reaktoren, bei denen aufgrund der zahlreichen Reaktionsrohre (17) eine hohe abzuführende Reaktionswärme anfällt oder benötigt wird, das Verhältnis von Rohrteilung zu Rohraussendurchmesser  $d_a$  vom Reaktordurchmesser bzw. vom Rohrbündelaussendurchmesser  $d_{RBa}$  abhängig zu machen. Bei einem Aussendurchmesser des Reaktionsrohrbündels (18) von mehr als 4 Metern ist ein Verhältnis von Rohrteilung  $t$  zu Rohraussendurchmesser  $d_a$  von wenigstens 1,3 bevorzugt.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte Application No

PCT/00/02304

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01J8/06 B01J19/24 B01J19/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 398 595 A (SMALL WILLIAM M) 16 August 1983 (1983-08-16) example 1	1,2,6,7
X	US 4 505 879 A (LHONORE PIERRE ET AL) 19 March 1985 (1985-03-19) example 1	1,2,6
A	US 5 821 390 A (HAMMON ULRICH ET AL) 13 October 1998 (1998-10-13) abstract; example 1	1-11
A	DE 28 30 765 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 31 January 1980 (1980-01-31) figure 1; examples 1-5	1-11
	--- -/-- ---	



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 August 2000

Date of mailing of the international search report

12/09/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo rd,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Willsher, C

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

CT/EP 00/02304

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 3 566 961 A (BETTERMANN DIETER ET AL) 2 March 1971 (1971-03-02) figures 3,4 -----	1-11



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

formal patent family members

International Application No

PC 00/02304

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4398595	A	16-08-1983	US 4311187 A	19-01-1982
			AU 523547 B	05-08-1982
			AU 6427680 A	04-06-1981
			CA 1135684 A	16-11-1982
			DE 3066319 D	01-03-1984
			EP 0030012 A	10-06-1981
			ES 497254 D	01-05-1982
			ES 8204157 A	16-07-1982
			GB 2064093 A, B	10-06-1981
			JP 1514667 C	24-08-1989
			JP 56094195 A	30-07-1981
			JP 63060314 B	24-11-1988
			MX 153823 A	19-01-1987
			US 4413394 A	08-11-1983
US 4505879	A	19-03-1985	FR 2452315 A	24-10-1980
			EP 0017559 A	15-10-1980
			ES 489853 A	16-09-1980
			JP 1246801 C	16-01-1985
			JP 55130941 A	11-10-1980
			JP 59021859 B	22-05-1984
			US 4518811 A	21-05-1985
US 5821390	A	13-10-1998	DE 4431957 A	16-03-1995
			CA 2157631 A	09-03-1996
			CN 1132735 A	09-10-1996
			CZ 9502293 A	17-04-1996
			DE 59500906 D	04-12-1997
			EP 0700714 A	13-03-1996
			ES 2107887 T	01-12-1997
			JP 8092147 A	09-04-1996
DE 2830765	A	31-01-1980	NONE	
US 3566961	A	02-03-1971	BE 720496 A	06-03-1969
			CH 493811 A	15-07-1970
			CS 154594 B	30-04-1974
			DE 1601162 A	29-10-1970
			FR 1577926 A	08-08-1969
			GB 1241703 A	04-08-1971
			NL 6812591 A	10-03-1969
			RO 59253 A	15-02-1976
			ES 357893 A	01-04-1970



F  
A

\  
r

1

2

PO 00/02304

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

### C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Willsher, C

## C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 3 566 961 A (BETTERMANN DIETER ET AL) 2. März 1971 (1971-03-02) Abbildungen 3,4 -----	1-11

# INTERNATIONALER RESEARCHBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die in der Patentfamilie gehören

Interne Aktenzeichen

PC 00/02304

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4398595 A	16-08-1983	US 4311187 A	19-01-1982
		AU 523547 B	05-08-1982
		AU 6427680 A	04-06-1981
		CA 1135684 A	16-11-1982
		DE 3066319 D	01-03-1984
		EP 0030012 A	10-06-1981
		ES 497254 D	01-05-1982
		ES 8204157 A	16-07-1982
		GB 2064093 A, B	10-06-1981
		JP 1514667 C	24-08-1989
		JP 56094195 A	30-07-1981
		JP 63060314 B	24-11-1988
		MX 153823 A	19-01-1987
		US 4413394 A	08-11-1983
US 4505879 A	19-03-1985	FR 2452315 A	24-10-1980
		EP 0017559 A	15-10-1980
		ES 489853 A	16-09-1980
		JP 1246801 C	16-01-1985
		JP 55130941 A	11-10-1980
		JP 59021859 B	22-05-1984
		US 4518811 A	21-05-1985
US 5821390 A	13-10-1998	DE 4431957 A	16-03-1995
		CA 2157631 A	09-03-1996
		CN 1132735 A	09-10-1996
		CZ 9502293 A	17-04-1996
		DE 59500906 D	04-12-1997
		EP 0700714 A	13-03-1996
		ES 2107887 T	01-12-1997
		JP 8092147 A	09-04-1996
DE 2830765 A	31-01-1980	KEINE	
US 3566961 A	02-03-1971	BE 720496 A	06-03-1969
		CH 493811 A	15-07-1970
		CS 154594 B	30-04-1974
		DE 1601162 A	29-10-1970
		FR 1577926 A	08-08-1969
		GB 1241703 A	04-08-1971
		NL 6812591 A	10-03-1969
		RO 59253 A	15-02-1976
		ES 357893 A	01-04-1970



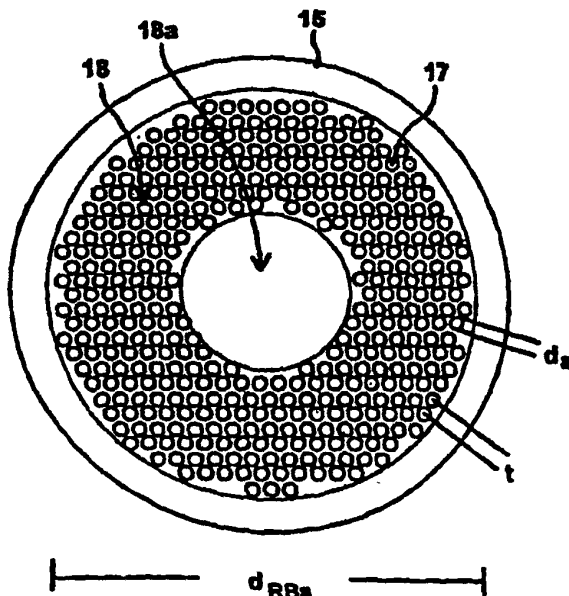
1

2

PCT

ORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT).

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :</b> <b>B01J 8/00</b>		<b>A2</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/54877</b>
		<b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b>	21. September 2000 (21.09.00)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP00/02304		<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).	
<b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 15. März 2000 (15.03.00)			
<b>(30) Prioritätsdaten:</b> 199 12 735.2 ✓ 16. März 1999 (16.03.99) DE 199 56 329.2 ✓ 23. November 1999 (23.11.99) DE			
<b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BASF AKTIENGESellschaft [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE).			
<b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> OLBERT, Gerhard [DE/DE]; Frankenweg 11, D-69221 Dossenheim (DE). CORR, Franz [DE/DE]; Königsbacher Str. 108, D-67067 Ludwigshafen (DE). REUTER, Peter [DE/DE]; Karl-Marx-Str. 43, D-68199 Mannheim (DE). WAMBACH, Ludwig [DE/DE]; Marstallstr. 49b, D-68723 Schwetzingen (DE). HAMMON, Ulrich [DE/DE]; Nietzschestr. 30, D-68165 Mannheim (DE).		<b>Veröffentlicht</b> Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.	
<b>(74) Anwälte:</b> KINZEBACH, Werner usw.; Reitsötter, Kinzebach & Partner, Sternwartstr. 4, D-81679 München (DE).			
<b>(54) Title:</b> MULTI-TUBE FIXED-BED REACTOR, ESPECIALLY FOR CATALYTIC GAS PHASE REACTIONS			
<b>(54) Bezeichnung:</b> ROHRBÜNDELREAKTOR, INSBESONDERE FÜR KATALYTISCHE GASPHASENREAKTIONEN			
<b>(57) Abstract</b> <p>The invention relates to a multi-tube fixed-bed reactor and to the use of a reactor of this type for carrying out catalytic gas phase reactions, especially for carrying out exothermic or endothermic catalytic gas phase reactions such as producing phthalic anhydride (PSA), acrylic acid (AA), methacrylic acid (MAA), acrolein, maleic anhydride (MSA), glyoxal, phosgene, hydrogen cyanide or vinyl formamide (VFA). According to the invention, in the case of larger reactors where a considerable reaction heat is produced or required and must be dissipated as a result of the numerous reaction tubes (17), the ratio of tube distribution <math>t</math> to tube outer diameter <math>d_a</math> is made dependant on the reactor diameter or the tube bundle diameter <math>d_{Rba}</math>. If the outer diameter of the reaction tube bundle (18) is more than 4 metres, a ratio of tube distribution <math>t</math> to tube outer diameter <math>d_a</math> of at least 1.3 is preferred.</p>			
<b>(57) Zusammenfassung</b> <p>Die Erfindung betrifft einen Rohrbündelreaktor und die Verwendung eines derartigen Reaktors zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen, insbesondere zur Durchführung von exothermen oder endothermen katalytischen Gasphasenreaktionen, wie der Herstellung von Phthalsäureanhydrid (PSA), Acrylsäure (AA), Methacrylsäure (MAA), Acrolein, Maleinsäureanhydrid (MSA), Glyoxal, Phosgen, Blausäure oder Vinylformamid (VFA). Erfindungsgemäss wird vorgeschlagen, bei grösseren Reaktoren, bei denen aufgrund der zahlreichen Reaktionsrohre (17) eine hohe abzuführende Reaktionswärme anfällt oder benötigt wird, das Verhältnis von Rohrteilung zu Rohraussendurchmesser <math>d_a</math> vom Reaktordurchmesser bzw. vom Rohrbündelaussendurchmesser <math>d_{Rba}</math> abhängig zu machen. Bei einem Aussendurchmesser des Reaktionsrohrbündels (18) von mehr als 4 Metern ist ein Verhältnis von Rohrteilung <math>t</math> zu Rohraussendurchmesser <math>d_a</math> von wenigstens 1,3 bevorzugt.</p>			



# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						



Rohrbündelreaktor, insbesondere für katalytische Gasphasenreaktionen.

## 5 Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft einen Rohrbündelreaktor und die Verwendung eines derartigen Reaktors zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen, insbesondere zur Durchführung von exothermen und endothermen katalytischen Gasphasenreaktionen, wie der Herstellung von Phthalsäureanhydrid (PSA), Acrylsäure (AA), Methacrylsäure (MAA), Acrolein, Maleinsäureanhydrid (MSA), Glyoxal, Phosgen, Blausäure oder Vinylformamid (VFA).

Rohrbündelreaktoren werden in der chemischen Industrie meist zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen an Festbettkatalysatoren verwendet.

Üblicherweise bestehen Rohrbündelreaktoren aus einem, in einem Mantel angeordneten, aus zahlreichen parallelen Reaktionsrohren aufgebauten Reaktionsrohrenbündel. Die Reaktionsrohre, die üblicherweise geträgerte Katalysatoren enthalten, sind mit ihren offenen Enden in Rohrböden abdichtend befestigt und münden in jeweils eine am oberen bzw. unteren Ende mit dem Mantel verbundene Haube. Neben geträgerten Katalysatoren können die Reaktionsrohre, alternativ oder zusätzlich, Schalenkatalysatoren, Vollkatalysatoren, geordnete Packungen aus Katalysatormaterial, die einem statischen Mischer vergleichbar angeordnet sind, enthalten. Schließlich ist es auch möglich, die Innenwand der Reaktionsrohre mit Katalysatormaterial zu beschichten. Über die Hauben wird das die Reaktionsrohre durchströmende Reaktionsgemisch zu- bzw. abgeführt. Durch den zwischen dem obersten und untersten Rohrboden befindlichen, die Reaktionsrohre umgebenden Raum, der durch Umlenkleche unterteilt sein kann, wird ein Wärmetauschkreislauf geleitet, um Reaktionswärme zu- bzw. abzuführen. Dazu weist der Mantel des Rohrbündelreaktors Mittel zur Zu- und Abführung des Wärmetauschkreislaufs auf, meist geeignete Ein- bzw. Austrittsringkanäle, durch die das Wärmetauschkreislaufmittel mit Hilfe geeigneter Pumpen in einem Kreislauf geführt wird. Nach dem Verlassen des Rohrbündelreaktors wird das Wärmetauschkreislaufmittel beispielsweise in einem außenliegenden Wärmetauscher wieder auf eine vorgegebene Solltemperatur gebracht, bevor es erneut in den Reaktor eintritt.

Bei exothermen Reaktionen kann auch mittels einer Siedekühlung temperiert werden.

Die im industriellen Produktionsprozeß verwendeten Rohrbündelreaktoren weisen einen Durchmesser von mehreren Metern auf. Aus wirtschaftlichen Gründen werden in den Reaktoren eine möglichst große Anzahl von Reaktionsrohren eingesetzt. Bei einem Reaktor von mehreren Metern Durchmesser liegt die Zahl der Reaktionsrohre meist im Bereich von 10.000 bis 50.000, bevorzugt im Bereich von 10.000 bis 30.000 Rohren. Bisher stand bei industriellen Rohrbündelreaktoren im Vordergrund, die Rohre so dicht wie möglich zu packen, um bei einer maximalen Reaktionsrohrzahl einen möglichst geringen Reaktordurchmesser zu erzielen. Üblicherweise sind die Rohre dabei in einer Dreiecksanordnung positioniert, meist in einem gleichseitigen Dreieck. Als Maß für die kompakte Anordnung der Reaktionsrohre dient das Verhältnis der sogenannten Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Rohres. Unter Rohrteilung versteht man dabei den Abstand der zentrischen Innenachsen von zueinander nächstliegenden Reaktionsrohren. Bekannte industrielle Reaktoren, etwa der in den Ausführungsbeispielen der deutschen Offenlegungsschrift DE 44 31 957 A1 beschriebene Reaktor, weisen ein Verhältniss von Rohrteilung zu Rohraußendurchmesser von 1,28 oder weniger auf.

Insbesondere bei der Durchführung von stark exothermen Oxidationsreaktionen, wie der Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Acrylsäure, Methacrylsäure, Acrolein, Maleinsäureanhydrid oder Glyoxal spielt die exakte Kontrolle der Reaktionstemperatur eine entscheidende Rolle. Bei diesen Reaktionen wird ein Gasgemisch durch die Reaktionsrohre geleitet, welche eine Festbettanordnung eines katalytisch aktiven Multimetalloxids enthalten. Beispielsweise werden Rohrbündelreaktoren zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid eingesetzt, welches ein wichtiges Zwischenprodukt zur Herstellung von synthetischen Harzen, Phthalatweichmachern, Phthalocyaninfarbstoffen und weiteren Feinchemikalien ist. Die weltweite Produktion von Phthalsäureanhydrid beträgt mehr als 4.000.000 Tonnen pro Jahr. Nach dem wichtigsten Herstellungsverfahren wird Phthalsäureanhydrid heute größtenteils durch Gasphasenoxidation von o-Xylol mit Luft als Oxidans hergestellt. Dazu wird o-Xylol verdampft, mit einem Überschuß an Luft gemischt und bei 340 – 440 °C über den in den Reaktionsrohren befindlichen Katalysator geleitet. Der Katalysator kann beispielsweise aus einem

Gemisch von  $V_2O_5$  und  $TiO_2$  mit Promotoren auf keramischen Körpern wie z. B. Porzellan- oder SiC-Kugeln oder -ringen bestehen. Typische Abmessungen dieser Keramikkörper betragen ca. 6 mm x 6 mm bzw. 8 mm x 6 mm. Das o-Xylol wird dabei mit einer Selektivität von 78 – 80 % zu Phthalsäureanhydrid oxidiert. Die Oxidation ist mit ca. – 1.110 kJ/mol stark exotherm.

Als Wärmetauschnittel eignen sich insbesondere Temperiermedien, die im bevorzugten Reaktionstemperaturbereich von 250 °C bis 500 °C, bevorzugt von 250 °C bis 380 °C flüssig sind. Besonders günstig ist beispielsweise die Verwendung von Schmelzen von Salzen wie etwa einer, insbesondere bei der PSA-Synthese bevorzugt eingesetzten Schmelze eines Gemischs aus Kaliumnitrat, Natriumnitrit und Natriumnitrat.

15

Die Verfahrensführung, insbesondere die Temperierung des Reaktors erfordert aus mehreren Gründen besondere Aufmerksamkeit: Bei der großen Anzahl von Röhren im Reaktor ist es erforderlich, daß sämtliche Rohre im gesamten Querschnitt mit der gleichen und zeitlich konstanten Gasmischung angeströmt werden, damit die Reaktion in allen Rohren gleich schnell und nicht in einigen bevorzugten Rohren besonders schnell abläuft. Insbesondere aber kann die hohe freiwerdende Reaktionsenthalpie dazu führen, daß der Katalysator bei Abweichungen vom vorgegebenen Temperaturbereich in einzelnen Rohren sintert oder schmilzt oder inaktiv wird. Dies ist mit beträchtlichen Risiken für die Anlage verbunden. Durch Inhomogenitäten in der Beaufschlagung werden außerdem die Reaktionsbedingungen in den Rohren unterschiedlich. Dadurch entstehen in erhöhtem Maß Nebenprodukte, welche die Ausbeute vermindern und in späteren Reinigungsstufen von dem gebildeten Phthalsäureanhydrid getrennt und entsorgt werden müssen. Die Reaktionstemperatur in Strömungsrichtung längs eines Reaktionsrohres durchläuft bei der Gasphasenoxidation ein Maximum, welches man als Hotspot (Heißpunkt) bezeichnet. Ein solcher Hotspot ist zwar grundsätzlich erwünscht. Problematisch ist jedoch eine zu hohe Hotspot-Temperatur, denn sie führt sowohl zu einer verringerten Lebensdauer des Katalysators als auch zu einer Abnahme der Selektivität der Reaktion.

40

Prinzipiell hat eine wirksame Reaktortemperierung daher die Aufgabe, Temperaturungleichverteilungen über den Querschnitt des Reaktors zu verringern und das Auftreten von unerwünscht hohen Hotspots zu verhindern.

5

Bei den bisherigen Reaktoren, die generell ein möglichst niedriges Verhältnis von Rohrteilung zu Rohraußendurchmesser aufweisen, war eine effektive Reaktortemperierung nur eingeschränkt möglich. Insbesondere bei zylindrischen Reaktorgeometrien wird das Wärmetauschkittel im Querstrom von einem Bereich außerhalb des Reaktionsrohrbündels zu einem reaktionsrohrfreien Innenraum des Reaktors bzw. umgekehrt geleitet. Dies führt zu einem starken Druckverlust und somit zu einem begrenzten Wärmetauschkittelstrom. Bisher war man daher gezwungen, leistungsfähige und folglich sehr teure Pumpeinrichtungen zum Fördern des Wärmetauschkittels einzusetzen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es nun, einen Reaktor zur Verfügung zu stellen, der eine gleichmäßigere Temperaturverteilung über den radialen Reaktorquerschnitt ermöglicht und zu hohe Wärmetauschkittelhotspots weitgehend verringert.

Gelöst wird diese Aufgabe durch den erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktor mit den Merkmalen des vorliegenden Anspruchs 1. Erfindungsgemäß wird vorgeschlagen, bei größeren Reaktoren, bei denen aufgrund der zahlreichen Reaktionsrohre eine hohe abzuführende Reaktionswärme anfällt, das Verhältnis von Rohrteilung  $t$  zu Rohraußendurchmesser  $d_a$  vom Reaktordurchmesser bzw. vom Rohrbündelaußendurchmesser  $d_{RBA}$  abhängig zu machen. Insbesondere wird erfindungsgemäß vorgeschlagen, ein Verhältnis von Rohrteilung  $t$  zu Rohraußendurchmesser  $d_a$  von wenigstens 1,3 vorzusehen. Die Reaktionsrohre sind dabei vorzugsweise so angeordnet, daß drei benachbarte Reaktionsrohre ein, vorzugsweise gleichseitiges Dreieck bilden. Die Rohrteilung  $t$  entspricht in diesem Fall der Seitenlänge des Dreiecks.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist daher ein Rohrbündelreaktor mit einem in einem Mantel angeordneten, aus zahlreichen parallelen Reaktionsrohren bestehenden Reaktionsrohrbündel und mit Mitteln zur Zu- und Abführung eines die Reaktionsrohre umströmenden Wärmetauschkittels, wobei die Reaktionsrohre einen Außendurchmesser  $d_a$  und eine Rohrteilung  $t$  aufweisen, wobei der Re-

aktor dadurch gekennzeichnet ist, daß das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung zu Rohraußendurchmesser eines Reaktionsrohrs wenigstens 1,3 beträgt.

5 Mit dem erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktor sind zahlreiche Vorteile verbunden.

Die Erhöhung des Verhältnisses von Rohrteilung zu Rohraußendurchmesser erlaubt bei einer gegebenen Pumpenleistung höhere Wärmetauschnittelströme und führt damit zu einer besseren Temperaturvergleichmäßigung über den Querschnitt und zu einer Verringerung des Wärmetauschnittelhotspots.

Überraschend stellt man fest, daß es möglich ist, die Wärmetauschnittelintrittstemperatur anzuheben, ohne die maximal zulässige Austrittstemperatur des Wärmetauschnittels zu überschreiten. Dies führt zu einer verbesserten Selektivität der Reaktion und einer daraus resultierenden Erhöhung der Ausbeute. Die Kapazität des Reaktors kann so bis zu 2 % gesteigert werden.

20 Die Verringerung des Wärmetauschnittelhotspots führt zu einer größeren Betriebssicherheit, da die Gefahr des Zündens des Reaktionsgemisches stark verringert wird.

25 Speziell beim Einsatz des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors bei der PSA-Synthese wurde gefunden, daß ein Teilungsverhältnis von mehr als 1,3 eine deutlich höhere Beladung des einströmenden Gasgemisches mit o-Xylol erlaubt.

30 Die gegenüber dem Stand der Technik nur geringfügig vergrößerte Rohrteilung führt auch nur zu einer geringen Vergrößerung des Reaktordurchmessers. Interessanterweise stellt man fest, daß diese geringe Zunahme der Abmessungen bei gegebener Pumpleistung einen nahezu doppelt so hohen Wärmetauschnittelstrom erlaubt.

35 Erfindungsgemäß wird ferner vorgeschlagen, daß das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung zum Außendurchmesser eines Reaktionsrohrs mit steigendem Außendurchmesser  $d_{RBA}$  des Reaktionsrohrbündels ansteigt. Damit ist es möglich, der zu- bzw. abzuführenden Reaktionswärme Rechnung zu tragen, die mit steigendem Rohrbündelaußendurchmesser und damit stark ansteigender Rohrzahl sehr hoch wird.

Das erfindungsgemäß vorgeschlagene Teilungsverhältnis von mehr als 1,3 wird besonders vorteilhaft bei großen Reaktoren eingesetzt. Gemäß einer ersten bevorzugten Ausführungsform weist das Reaktionsrohrbündel einen im wesentlichen kreisförmigen Querschnitt mit einem Außendurchmesser  $d_{RBA}$  von mehr als 4 m auf. Ein solches Reaktionsrohrbündel hat meist einen rohrfreien Zentralbereich über den das radial an den Reaktionsrohren vorbeiströmende Wärmetauschkittel axial abfließen kann.

- 10 Besonders bevorzugt liegt bei dieser Ausführungsform das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung zu Außendurchmesser eines Reaktionsrohrs bei Reaktionsrohrbündeldurchmessern zwischen 4 m und 12 m im Bereich von 1,3 bis 1,6 und bei Reaktionsrohrbündeldurchmessern zwischen 4 m und 10 m am bevorzugtesten im Bereich von 1,3 bis 1,5.

Rohrbündelreaktoren mit derartigen Durchmessern weisen im allgemeinen 10.000 bis 50.000, vorzugsweise 10.000 bis 30.000 Reaktionsrohre auf.

20

- Die Erfindung ist jedoch nicht auf Reaktoren mit kreiszylindrischen Reaktionsrohrbündeln beschränkt. Falls beispielsweise Reaktionsrohrbündel mit einem rechteckigen Querschnitt oder einem kreisförmigen Querschnitt mit reaktionsrohrfreien Endsegmenten verwendet werden, ist das Verhältnis von Rohrteilung zu Rohraußendurchmesser bevorzugt von der vom Wärmetauschkittel quer durchströmten Tiefe  $d_{RBT}$  des Rohrbündels abhängig. Bei einem erfindungsgemäß vorgesehenen Teilungsverhältnis von 1,3 weist das Reaktionsrohrbündel bevorzugt einen im wesentlichen rechteckigen Querschnitt mit einer parallel zur Strömungsrichtung des Wärmetauschkittels gemessenen Rohrbündeltiefe von wenigstens 1,3 m auf.

- Vorteilhaft liegt die Tiefe  $d_{RBT}$  des Reaktionsrohrbündels zwischen 1,3 m und 3 m, wobei dann das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs im Bereich von mehr als 1,3 bis 1,6 liegt.

- Üblicherweise sind die Reaktionsrohre aus ferritischem Stahl gefertigt und weisen eine typische Wanddicke von 1 bis 3 mm auf. Ihr Innendurchmesser beträgt in der Regel 20 bis 70 mm, bevorzugt 20 bis 35 mm. Die typische Länge der Reaktionsrohre, und damit

die Länge des zylindrischen Bereichs des Reaktors liegt im Bereich von 1,5 bis 7 m.

Bei Reaktionsrohrbündeln mit im wesentlichen rechteckigem Querschnitt beträgt das Verhältnis von Querschnittstiefe  $d_{RBt}$  zu Querschnittslänge des Bündels bevorzugt 1:1 bis 1:10, besonders bevorzugt 1:1,5 bis 1:4.

Mit dem erfindungsgemäßen Reaktor können Durchflußmengen des Wärmetauschnitts, etwa einer Salzsäure, von 10.000 bis 20.000 m<sup>3</sup> pro Stunde realisiert werden.

Mit einer Verringerung des reaktionsbedingten Hotspots im Reaktionsrohr wird einerseits die Lebensdauer des Katalysators verlängert und andererseits die Selektivität der Reaktion verbessert. Insbesondere die Verlängerung der Katalysatorlebensdauer stellt einen wichtigen Vorteil des erfindungsgemäßen Reaktors da, denn mit dem ab einer gewissen Betriebsdauer notwendigen Austausch des Katalysatormaterials sind hohe Kosten und lange Abschaltzeiten des Reaktors verbunden.

Häufig wird die Reaktionsführung in den Rohren des Reaktors über die Katalysatorfüllung gesteuert. Beispielsweise kann man eine strukturierte Schüttung von zwei unterschiedlich aktiven Katalysatoren verwenden und so in Längsrichtung des Reaktionsrohrs unterschiedliche Reaktionsbedingungen schaffen. Gemäß einer weiteren vorteilhaften Ausführungsform des erfindungsgemäßen Rohr-bündelreaktors ist der Reaktorinnenraum, in Längsrichtung der Reaktionsrohre gesehen, in mindestens zwei Zonen unterteilt, die von verschieden temperiertem Wärmetauschnitt durchströmt werden. Durch diese Maßnahme wird einerseits eine weitere Möglichkeit der Reaktionsführung geschaffen, indem man die beiden Katalysatoren auf unterschiedliche Temperaturen thermostatisiert. Andererseits ist es bei manchen Prozessen sogar möglich, lediglich einen Katalysatortyp zur Füllung der Rohre zu verwenden und die Reaktionsführung ausschließlich über zwei oder mehr, vorzugsweise bis zu fünf, unterschiedlich temperierte Zonen zu bewirken. Bevorzugt werden in aufeinanderfolgenden Zonen Temperaturunterschiede des Wärmetauschnitts von bis zu 60 °C, vorteilhaft bis 40 °C realisiert. Die Trennung der einzelnen Zonen voneinander wird bevorzugt durch Rohrbodenbleche gewährleistet, die im we-

sentlichen horizontal im Reaktor angeordnet sind und Ausnehmungen zur Durchführung der Reaktionsrohre besitzen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch die Verwendung eines erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist insbesondere die Verwendung eines erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors zur Durchführung von Oxidationsreaktionen, insbesondere zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Maleinsäureanhydrid, Acrylsäure, Acrolein, Methacrylsäure, Glyoxal, Phosgen, Blausäure oder Vinylformamid. Derartige Herstellungsverfahren unter Verwendung von Rohrbündelreaktoren mit Katalysatoren in Festbettanordnung sind bekannt (vgl. beispielsweise Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5<sup>th</sup> Edition, Volume B4, Table 7 auf Seite 103, mit weiteren Nachweisen).

Im folgenden wird die Erfindung unter Bezugnahme auf in der beigefügten Zeichnung dargestellte, bevorzugte Ausführungsbeispiele näher erläutert. Die unten erwähnte Herstellung von Phthalsäureanhydrid wurde rein beispielhaft für die Verwendung des erfindungsgemäßen Reaktors bei oxidativen Gasphasenreaktionen herangezogen und stellt keine Beschränkung der Erfindung auf diesen Anwendungsfall dar.

In der Zeichnung zeigt:

Figur 1 eine schematische Darstellung eines in eine Anlage zur Phthalsäureanhydridherstellung integrierten erfindungsgemäßen Reaktors;

Figur 2 einen Längsschnitt einer ersten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors;

Figur 3 einen Querschnitt durch den Reaktor der Fig. 2 entlang der Linie III - III;

Figur 4 einen vergrößerten Detailausschnitt des Reaktors der Figur 3;



Figur 5 einen Längsschnitt einer zweiten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors;

Figur 6 einen Querschnitt durch den Reaktor der Fig. 5 entlang  
5 der Linie VI - VI;

Figur 7 einen Querschnitt durch eine dritte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors; und

10 Figur 8 einen Längsschnitt einer vierten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors.

Bezugnehmend auf Figur 1 erkennt man eine schematisch dargestellte Anlage zur Phthalsäureanhydrid-Herstellung. Eine detail-  
15 lierte Beschreibung des Herstellungsverfahrens findet sich beispielsweise in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5th Edition, Vol. 20A, S. 181 ff.

In einem Verdampfer 10 wird o-Xylol oder Naphthalin verdampft und  
20 mit einem Überschuß an durch ein Gebläse 11 und einen Erhitzer 12 auf ca. 120 bis 300° C erhitzter Luft gemischt. Das o-Xylol/Luft-Gemisch gelangt in den Reaktor 13, wo es im Bereich der oberen Haube 14 gleichmäßig über den gesamten Reaktorquerschnitt verteilt wird. Die obere Haube 14 wird zum zylindrischen Reaktorman-  
25 tel 15 hin durch ein oberes Bodenblech 16 abgeschlossen. In das Bodenblech 16 münden die Reaktionsrohre 17 des Rohrbündels 18. Die Reaktionsrohre 17 sind in ihrem oberen Bereich abdichtend mit dem Boden 16 verschweißt. In den Reaktionsrohren 17 befindet sich das (nicht dargestellte) Katalysatormaterial. In ihrem unteren  
30 Bereich sind die Reaktionsrohre 17 mit einem unteren Bodenblech 19 abdichtend verschweißt und münden in eine untere Haube 20 des Reaktors 13. Das o-Xylol/Luft-Gemisch durchströmt die Reaktionsrohre und wird größtenteils zu Phthalsäureanhydrid oxidiert. Das heiße Reaktionsgas wird über eine Leitung 21 zu sog. Desublimato-  
35 ren oder Abscheidern 22 geleitet, wo es in Form feinsten Kristalle abgeschieden wird. Von den Abscheidern 22 wird das Phthalsäureanhydrid abgeschmolzen und in einer anschließenden Destillationseinrichtung 23 aus dem abgeschmolzenen Roh-Phthalsäureanhydrid die Reinsubstanz gewonnen (entsprechend Ullmann's Encyclope-  
40 dia of Industrial Chemistry, 5th Edition, Vol. 20A, S. 181 ff.).

Das Reaktionsrohrbündel 18 wird durch einen Wärmetauschkreislauf, der insgesamt mit der Bezugsziffer 24 bezeichnet ist, temperiert. Dazu wird eine Salzschnmelze aus Natriumnitrat, Natriumnitrit und Kaliumnitrit über Mantelöffnungen 25 in den zylindrischen Mantelabschnitt des Reaktors geleitet und dort im Längs-, Kreuzquer-, Gegen- oder Gleichstrom an den Reaktionsrohren 17 des Bündels 18 vorbeigeführt, um die bei der Oxidation von o-Xylol entstehende Reaktionswärme abzuführen.

Das Wärmetauschkittel verläßt den Reaktor über Mantelöffnungen 26 und gelangt in einen außenliegenden Wärmetauscher 27, der von einem (nicht dargestellten) Dampferzeuger über Leitungen 28, 29 auf die gewünschte Reaktionstemperatur, die meist in einem Bereich zwischen 340 und 440 °C liegt, temperiert wird. Die genaue Wahl der Reaktionstemperatur hängt insbesondere vom verwendeten Katalysatormaterial ab und sollte möglichst konstant eingehalten werden.

In Figur 2 ist eine erste Ausführungsform des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors detaillierter dargestellt. Figur 3 zeigt einen Schnitt durch den in Figur 2 dargestellten Reaktor entlang der Linie III - III. Elemente, welche eine vergleichbare Funktion wie bereits im Zusammenhang mit Figur 1 beschriebene Elemente erfüllen, sind mit den gleichen Bezugsziffern bezeichnet.

Der zylindrische Reaktor 13 weist ein vertikal angeordnetes Reaktionsrohrbündel 18 mit kreisförmigem Querschnitt und einem Außendurchmesser  $d_{RBA}$  auf (vergl. Fig. 3). Die Reaktionsrohre 17 sind auf einem Kreisring gleichmäßig verteilt. Der mittlere Bereich 18a des Rohrbündels 18 ist Reaktionsrohrfrei.

Das Wärmetauschkittel wird über eine oder mehrere Pumpen 32 über Ringleitungen 30, 31 durch Mantelöffnungen 25, 26 dem die Reaktionsrohre umgebenden Raum zu- bzw. aus diesem abgeführt. Mit Hilfe von in dem Reaktor angeordneten Umlenkscheiben 33 wird eine meanderförmige Strömung des Wärmetauschkittels realisiert, wobei jedoch im Bereich der Reaktionsrohre 17 eine radiale Strömung vorherrscht.

In der Querschnittsdarstellung der Figuren 3 und 4 sind die Rohrtteilung  $t$ , der Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs 17 und der Außendurchmesser  $d_{RBA}$  des Reaktionsrohrbündels 18 angedeutet. Es

sei angemerkt, daß die Darstellung der Figur 3 (ebso wie die der Figuren 6 und 7) nicht maßstäblich ist. In der Realität ist der Durchmesser der Reaktionsrohre 17 verglichen dem Rohrbündelaußendurchmesser wesentlich kleiner.

5

Zur besseren Veranschaulichung der wesentlichen Kenngrößen des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors ist dabei in Figur 4 ein Ausschnitt des in Figur 3 gezeigten Rohrbündels 18 in größerem Maßstab dargestellt. Insbesondere in der Darstellung der Fig. 4  
10 erkennt man, daß jeweils drei benachbarte Reaktionsrohre die Eckpunkte eines gleichseitigen Dreiecks bilden.

Die in Figuren 5 und 6 dargestellte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors, sowie die Variante der Figur 7 weisen je-  
15 weils ein Reaktionsrohrbündel 18 mit im wesentlichen rechteckigem Querschnitt auf. Mit einer solchen Geometrie sind insbesondere bei einer Querstromkühlung Vorteile aufgrund von geringeren Strömungswiderständen für den Wärmetauschnitteltransport verbunden.

20 Mit dem erfindungsgemäß vorgeschlagenen Teilungsverhältnis werden dieser Vorteile weiter verstärkt.

An einander gegenüber liegenden breiten Seitenflächen des Reaktors sind reaktionsrohrfreie Räume 34 zum Verteilen bzw. Sammeln  
25 des Wärmetauschnittels vorgesehen. Bei der Variante der Figur 6 hat der Reaktormantel 15 selbst einen rechteckigen Querschnitt, während bei der Variante der Figur 7 ein zylindrischer Reaktor eingesetzt wird. Der im wesentlichen rechteckige Querschnitt des Reaktionsrohrbündels 18 entsteht im letzteren Fall durch die re-  
30 aktionsrohrfreien Rohrsegmente 34. Erfindungsgemäß wird im Fall von im wesentlichen rechteckigen Reaktionsrohrbündeln das Teilungsverhältnis in Abhängigkeit von der quer durchströmten Tiefe  $d_{RBt}$  des Rohrbündels 18 gewählt.

35 In Figur 8 ist schließlich eine vierte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors in einem schematischen Längsschnitt dargestellt. Bei dem Reaktor 35 handelt es sich in diesem Fall um einen Zweizonenreaktor, der, in Längsrichtung der Reaktionsrohr 17 betrachtet, in zwei unterschiedlich temperierte Zo-  
40 nen, 36, 37 unterteilt ist. Die Zonen 36, 37 werden von separaten Wärmetauschnittelkreisläufen versorgt. Im Beispiel wird eine erste Salzlösung über die Stutzen 38, 39 in die erste Zone 36 ein-

geleitet und über Stützen 40, 41 wieder abgeführt. Entsprechend wird eine zweite Salzlösung über Stützen 42, 43 in die zweite Zone geleitet und über Stützen 44, 45 wieder abgeführt. Die beiden Zonen 36, 37 sind über ein 50 mm dickes Rohrbodenblech 46 voneinander getrennt. Das Blech weist Ausnehmungen auf, durch welche die Reaktionsrohre 17 eingesetzt werden. Nach Einsetzen der Rohre werden diese hydraulisch etwas erweitert, so daß ein guter und weitgehend dichter Sitz der Rohre 17 im Rohrbodenblech 46 erreicht wird. Innerhalb einer Zone sind Umlenkbleche 47 angeordnet, welche die Salzschnmelze radial von Außen in ein reaktionsrohrfreies Zentrum des Reaktors leiten, wo sie nach oben umgelenkt und wieder radial nach Außen abgeführt wird. In Figur 8 ist mit großen Pfeilen 48 die Strömungsrichtung der Reaktionsgase und mit kleineren Pfeilen 49, 50 der Strom der ersten bzw. zweiten Salzschnmelze symbolisiert.

### Beispiele

Die in den im folgenden beschriebenen Beispielen verwendeten Katalysatoren wurden wie folgt hergestellt.

#### Katalysator I:

50 kg Steatit (Magnesiumsilikat)-Ringe mit einem äußeren Durchmesser von 8 mm, einer Länge von 6 mm und einer Wandstärke von 1,5 mm wurden in einer Dragiertrommel auf 160 °C erhitzt und mit einer Suspension aus 28,6 kg Anatas mit einer BET-Oberfläche von 20 m<sup>2</sup>/g, 2,19 kg Vanadyloxalat, 0,176 kg Cäsiumsulfat, 44,1 kg Wasser und 9,14 kg Formamid besprüht, bis das Gewicht der aufgetragenen Schicht 10,5% des Gesamtgewichts des fertigen Katalysators betrug (nach Calcination bei 450 °C).

Die auf diese weise aufgebrachte katalytisch aktive Masse, also die Katalysatorschale, bestand aus 4,0 Gew.-% Vanadium (berechnet als V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) i 0,4 Gew.-% Cäsium (berechnet als Cs) und 95,6 Gew.-% Titandioxid.

35

#### Katalysator II:

50 kg Steatit (Magnesiumsilikat)-Ringe mit einem äußeren Durchmesser von 8 mm, einer Länge von 6 mm und einer Wandstärke von 1,5 mm wurden in einer Dragiertrommel auf 160 °C erhitzt und mit einer Suspension aus 28,6 kg Anatas mit einer BET-Oberfläche von 20 m<sup>2</sup>/g, 4,11 kg Vanadyloxalat, 1,03 kg Antimontrioxid, 0,179 kg Ammoniumdihydrogenphosphat, 0,045 kg Cäsiumsulfat, 44,1 kg Wasser

und 9,14 kg Formamid besprüht, bis das Gewicht der aufgetragenen Schicht 10,5% des Gesamtgewichts des fertigen Katalysators betrug (nach Calcination bei 450 °C).

Die auf diese Weise aufgebraachte katalytisch aktive Masse, also 5 die Katalysatorschale, bestand aus 0,15 Gew.-% Phosphor (berechnet als P), 7,5 Gew.-% Vanadium (berechnet als  $V_2O_5$ ), 3,2 Gew.-% Antimon (berechnet als  $Sb_2O_3$ ), 0,1 Gew.-% Cäsium (berechnet als Cs) und 89,05 Gew.-% Titandioxid.

10 Beispiel 1: Herstellung von PSA mit einem erfindungsgemäßen Reaktor.

In dem erfindungsgemäßen Reaktor war ein Rohrbündel mit einem Außendurchmesser von  $d_{RBA} = 5,435$  m angeordnet. Es bestand aus ca. 15 14.000 Reaktionsrohren aus Stahl, die jeweils 3,5 m lang waren und einen Außendurchmesser  $d_a = 29$  mm hatten. Die Rohrteilung  $t$  betrug 40 mm; somit war das Verhältnis  $t/d_a = 1,3793$ . Durch das Rohr wurden stündlich von oben nach unten 4 Nm<sup>3</sup> Luft mit einer Be- ladung an 98,5 Gew.-%igem o-Xylol von 90 g/Nm<sup>3</sup> geleitet. Die Reak- 20 tionsrohre waren so gefüllt, daß zwei unterschiedlich aktive Katalysatorzonen gebildet wurden. Dazu wird zunächst der Katalysator II in jedes Rohr gefüllt, bis eine (vom Boden aus gemessene) Schüttungshöhe von 1,3 m erreicht wurde. Dann wird eine Schüttung des Katalysators I mit einer Höhe von 1,7 m auf 25 die Schicht des Katalysator II aufgebracht.

Als Wärmetauschnittel wurde eine Salzschnmelze aus  $KNO_3$ ,  $NaNO_2$  und  $NaNO_3$  verwendet, die mit einer Temperatur von 348,9 °C bei einem Durchfluß von 11.000 m<sup>3</sup> pro Stunde durch den Reaktor geleitet 30 wurde. Die Austrittstemperatur der Schmelze betrug 351,1 °C. Die Hotspot-Temperatur der Salzschnmelze lag 3,98 °C über der Salzeintrittstemperatur.

Auf verschiedenen Querschnittsniveaus waren radial mehrere Temper- 35 aturfühler in der Schmelze angeordnet. Die gemessenen Temperaturunterschiede über den Reaktorquerschnitt betrugen maximal ca. 2,2 °C.

Die Ausbeute an ans PSA betrug 78.9 mol%.

40

Beispiel 2: (Vergleichsbeispiel) Herstellung von PSA mit einem Reaktor gemäß Stand der Technik.

## 14

In dem Reaktor des Standes der Technik war ein Rohrbündel mit einem Außendurchmesser von  $d_{RBA} = 5,021 \text{ m}$  angeordnet. Es bestand aus ca. 14.000 Reaktionsrohren aus Stahl, die jeweils 3,5 m lang waren und einen Außendurchmesser  $d_a = 30 \text{ mm}$  hatten. Die Rohrteilung  $t$  betrug 38 mm; somit war das Verhältnis  $t/d_a = 1,267$ . Wieder wurden durch die Füllung der Reaktionsrohre - wie in Beispiel 1 beschrieben - zwei unterschiedlich aktive Katalysatorzonen gebildet.

10 Durch das Rohr wurden wieder stündlich von oben nach unten  $4 \text{ Nm}^3$  Luft mit einer Beladung an 98,5 Gew.-%igem o-Xylol von  $90 \text{ g/Nm}^3$  geleitet. Als Wärmetauschnittel wurde wie im erfindungsgemäßen Beispiel eine Salzschnelze aus  $\text{KNO}_3$ ,  $\text{NaNO}_2$  und  $\text{NaNO}_3$  verwendet.

15 Die Eintrittstemperatur der Schnelze betrug  $345,9 \text{ }^\circ\text{C}$ ; es wurden  $6.200 \text{ m}^3$  Schnelze pro Stunde durch den Reaktor geleitet. Die Austrittstemperatur der Schnelze lag bei  $349,7 \text{ }^\circ\text{C}$ . Die Hotspot-Temperatur der Salzschnelze lag  $7,2 \text{ }^\circ\text{C}$  über der Salzeintrittstemperatur.

20

Die gemessenen Temperaturunterschiede über den Reaktorquerschnitt betrugen maximal ca.  $4,2 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Die Ausbeute an PSA betrug  $77,8 \text{ mol\%}$ .

25

2202/cs

30

35

40

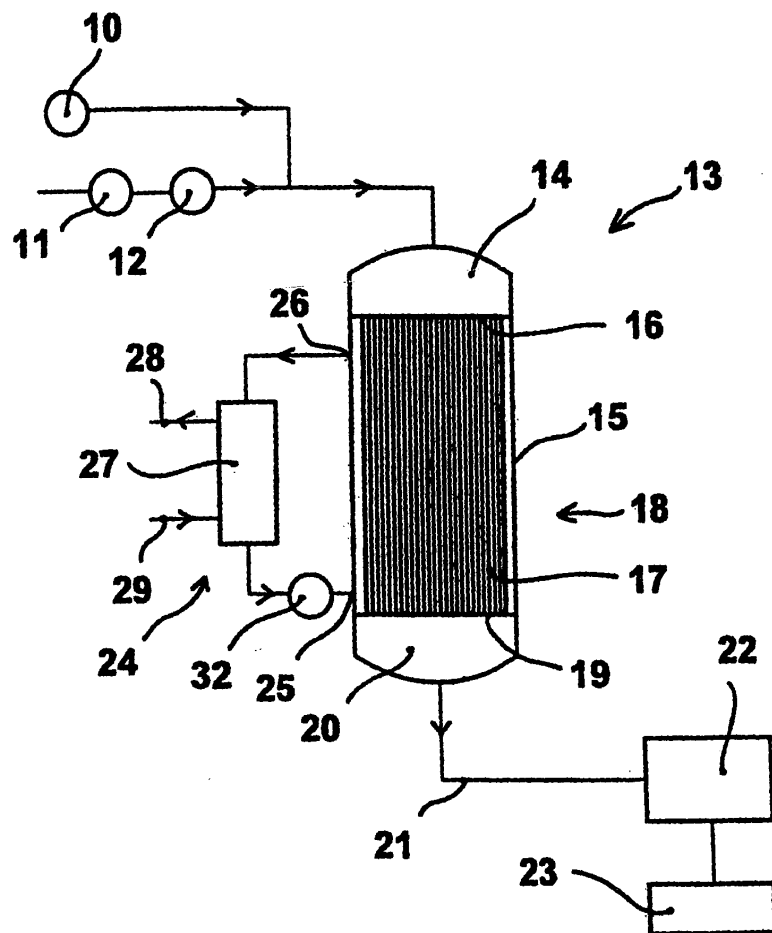
## Patentansprüche

1. Rohrbündelreaktor (13) mit einem in einem Mantel (15) angeordneten, aus zahlreichen parallelen Reaktionsrohren (17) bestehenden Reaktionsrohrbündel (18) und mit Mitteln zur Zu- und Abführung eines die Reaktionsrohre (17) umströmenden Wärmetauschnittels, wobei die Reaktionsrohre einen Außendurchmesser  $d_a$  und eine Rohrteilung  $t$  aufweisen,  
dadurch gekennzeichnet, daß  
das Verhältnis  $t / d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs wenigstens 1,3 beträgt.
2. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) mit zunehmenden Querabmessungen des Reaktionsrohrbündels (18) ansteigt.
3. Rohrbündelreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsrohrbündel (18) einen im wesentlichen kreisförmigen Querschnitt mit einem Außendurchmesser  $d_{RBA}$  von mehr als 4 m aufweist.
4. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Außendurchmesser  $d_{RBA}$  des Reaktionsrohrbündels (18) zwischen 4 m und 12 m beträgt und das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) im Bereich von 1,3 und 1,6 liegt.
5. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Außendurchmesser  $d_{RBA}$  des Reaktionsrohrbündels (18) zwischen 4 m und 10 m beträgt und das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) im Bereich von 1,3 und 1,5 liegt.
6. Rohrbündelreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsrohrbündel (18) einen im wesentlichen rechteckigen Querschnitt mit einer parallel zur Strömungsrichtung des Wärmetauschnittels gemessenen Rohrbündeltiefe  $d_{RBt}$  von wenigstens 1,3 m aufweist.

7. Rohrbündelreaktor gemäß Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Tiefe  $d_{RBt}$  des Reaktionsrohrbündels (18) zwischen 1,3  
und 4 m beträgt und das Verhältnis  $t/d_a$  von Rohrteilung  $t$  zum  
Außendurchmesser  $d_a$  eines Reaktionsrohrs (17) im Bereich von  
1,3 und 1,6 liegt.
8. Rohrbündelreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch  
gekennzeichnet, daß das Reaktionsrohrbündel (18) 10.000 bis  
50.000 Reaktionsrohre (17) aufweist.
9. Rohrbündelreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch  
gekennzeichnet, daß der Reaktor in Längsrichtung der Reakti-  
onsrohre (17) in mindestens zwei Zonen (36,37) unterteilt  
ist, die von verschieden temperiertem Wärmetauschnittel  
durchströmt werden.
10. Verwendung eines Rohrbündelreaktors nach einem der Ansprüche 1  
bis 9 zur Durchführung von katalytischen Gasphasenreaktionen.
11. Verwendung eines Rohrbündelreaktors nach einem der Ansprüche  
1 bis 9 zur Durchführung von Oxidationsreaktionen, insbeson-  
dere zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Maleinsäurean-  
hydrid, Acrylsäure, Acrolein, Methacrylsäure, Glyoxal, Phos-  
gen, Blausäure oder Vinylformamid.

---



**Fig. 1**



1

2

3

4

5

2/4

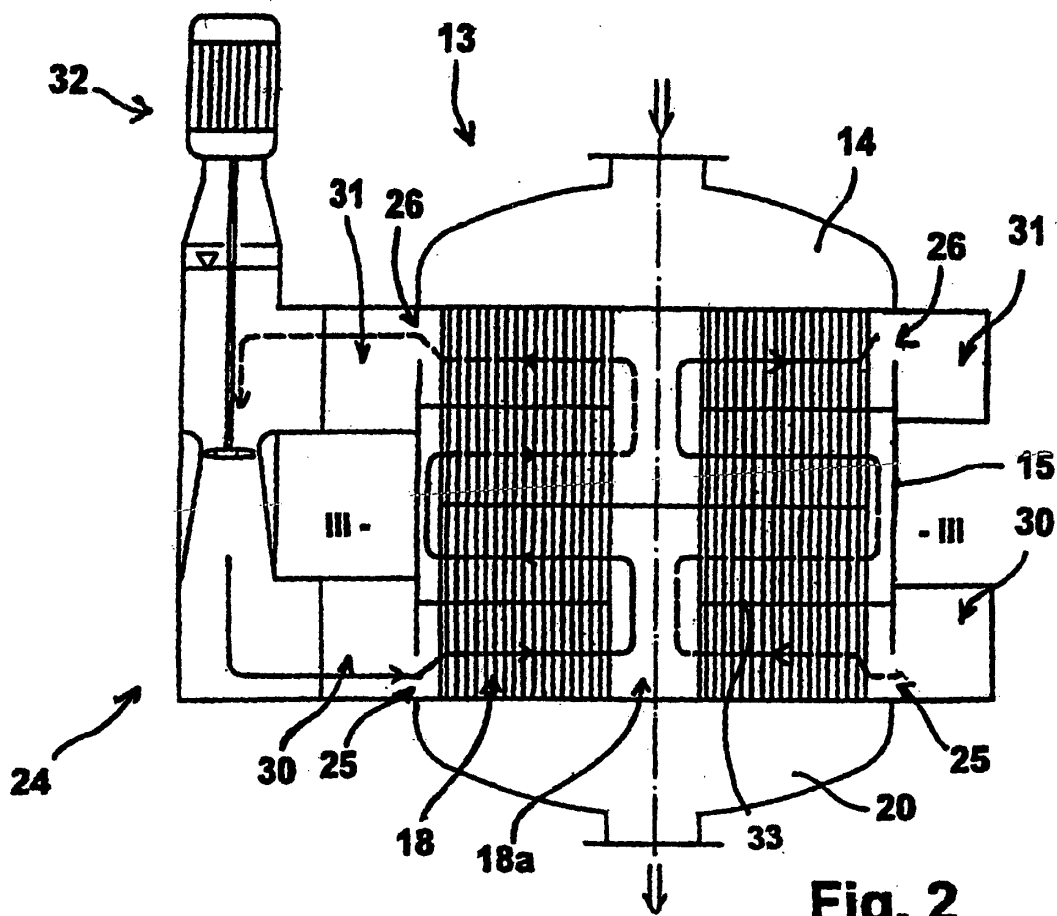


Fig. 2

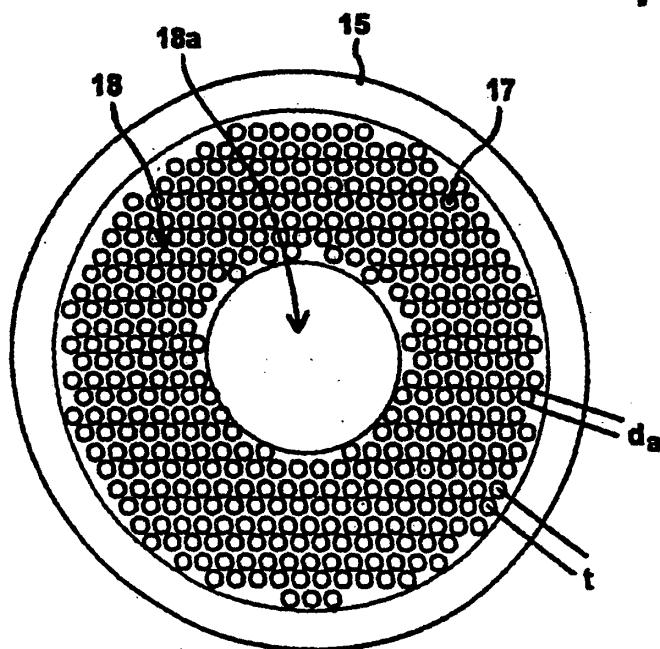


Fig. 3



3/4

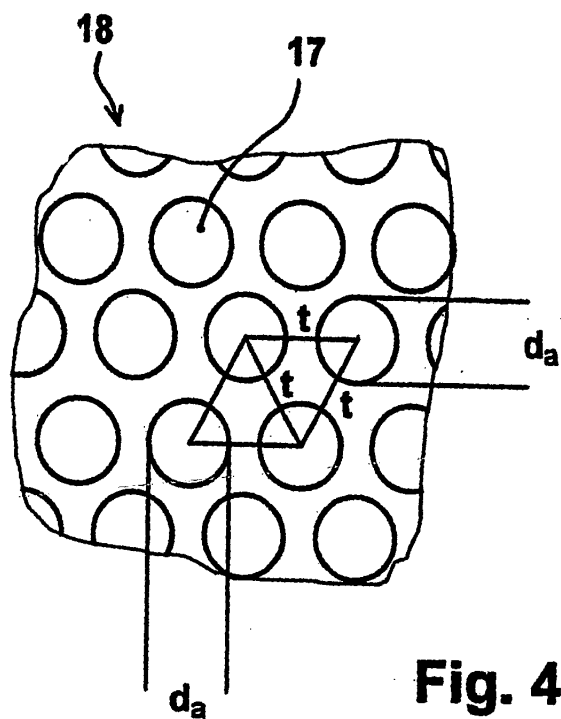


Fig. 4

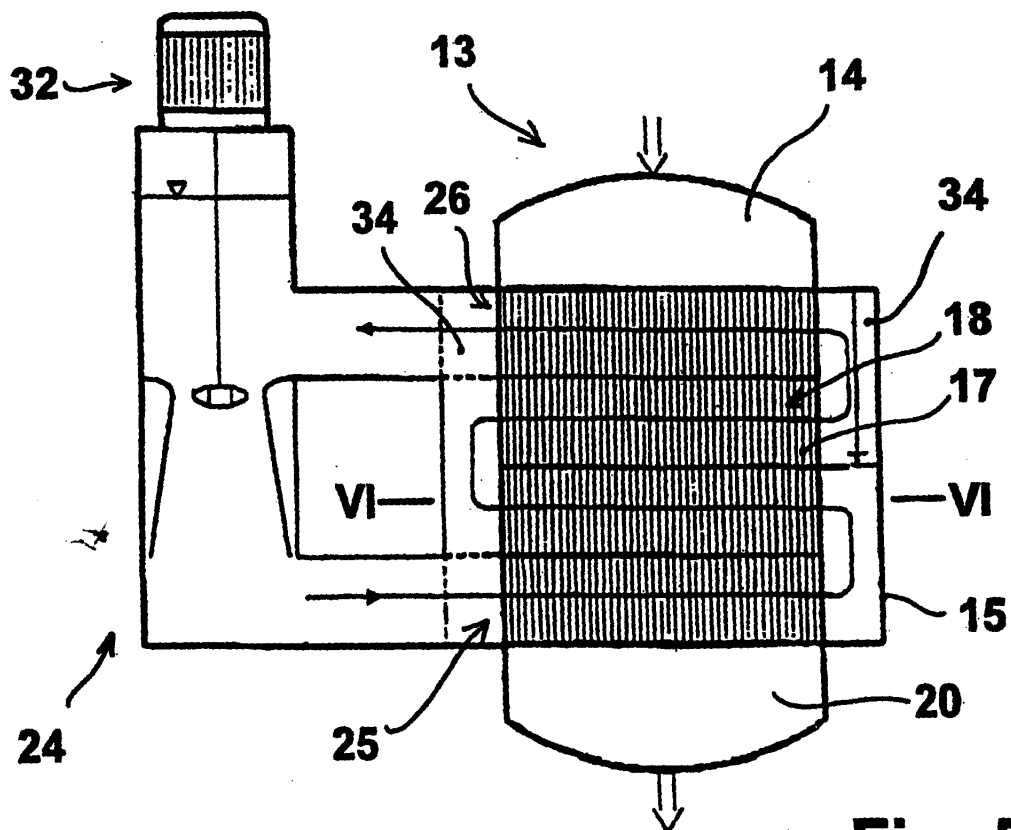


Fig. 5



1

2



3

4

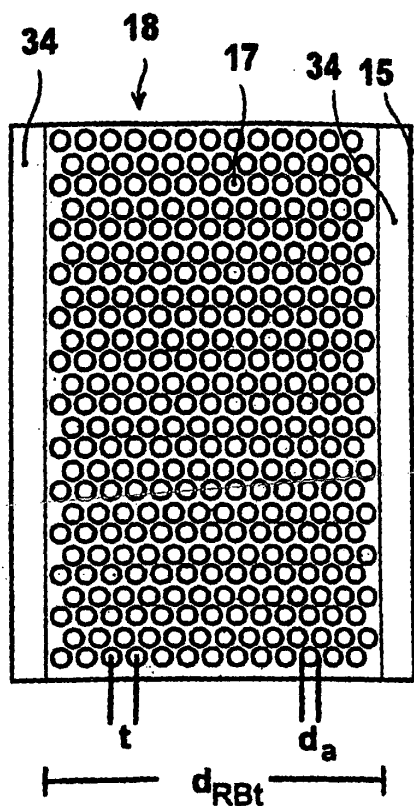


Fig. 6

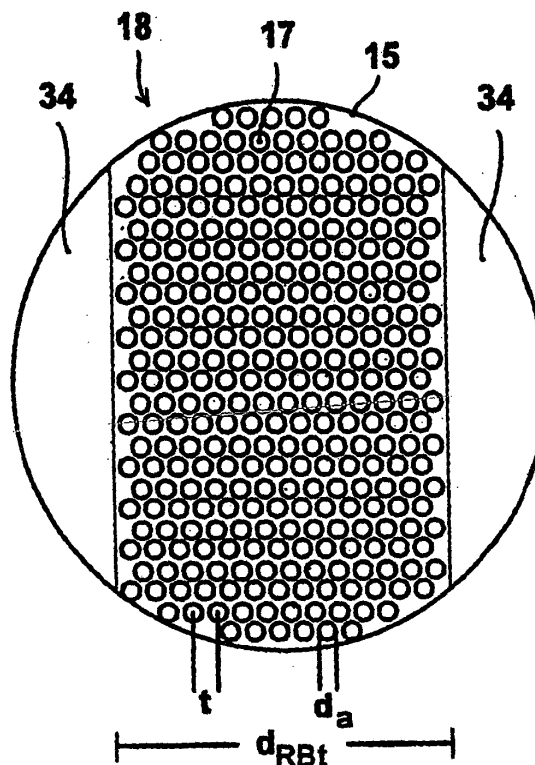


Fig. 7

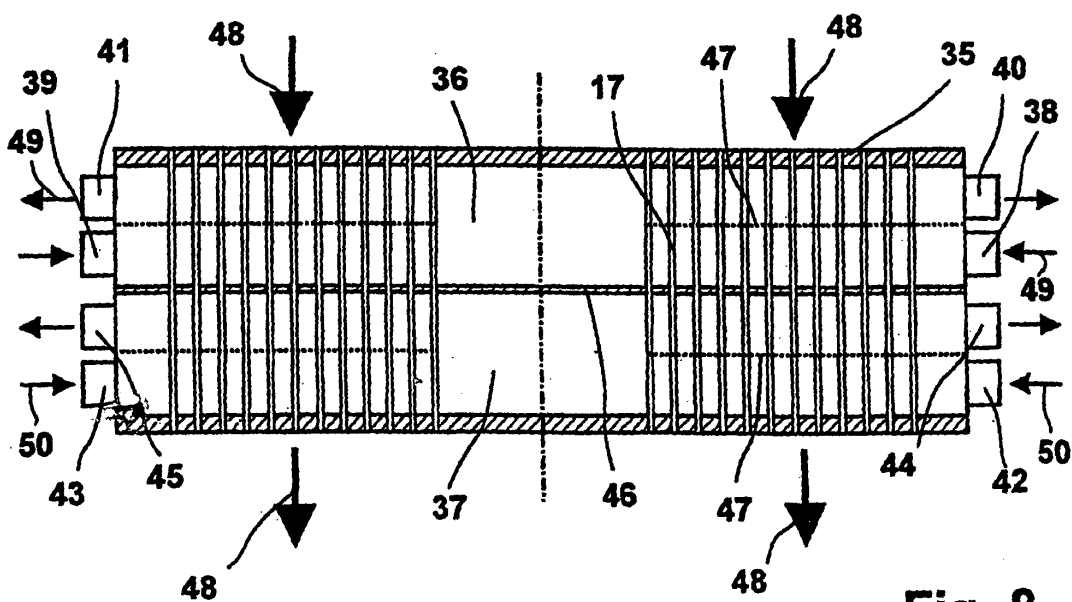


Fig. 8



1

2

3